# (19)日本国特新庁 (JP) (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出顧公開番号 特開2000-243411 (P2000-243411A)

(43)公開日 平成12年9月8日(2000.9.8)

(51)Int(1."		設別記号	ΡI			
H01M	8/02		H01M	8/02	E	5H018
	4/96			4/96	M	5H026
	8/10			8/10		

### 客査請求 未請求 請求項の数8 OL (全 6 頁)

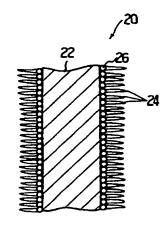
(21) 出腹番号	特惠平11-37342	(71)出職人 000003207
		トヨタ自動車株式会社
(22)出版日	平成11年2月16日(1999.2.16)	愛知県登田市トヨタ町 1 番地
		(72) 発明者 毛利 歓芹
		愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動
		車株式会社内
		(74)代理人 100075258
		<b>弁理士 吉田 研二 (外2名)</b>
		Fターム(参考) 5H018 AA08 AS02 AS03 BB00 BB08
		DDO5 EED3 EED5 EE18 HHO3
		5H026 AA06 B900 BB04 CX02 CX05
		EED5 EE19 HE03

# (54) [発明の名称] 燃料電池用の電解質膜と電気との接合体およびその製造方法

### (57)【要約】

【課題】 燃料電池用の電解質膜と電極との接合体にお いて排水性やガス透過性をよくする。

【解決手段】 電解質膜22の表面にカーボン粒子26 を強布した後に、電界植毛の技術を用いて電解質膜22 の表面に触媒を担持した複数の炭素繊維24を略90度 の角度をもって植毛する。 炭素繊維24が路90度の角 度をもって植毛されているから、接合体20は、電解質 膜22からの高い排水性と電解質膜22への高いガス透 過性を備える。また、電解質膜22にカーボン粒子26 を塗布することにより、電解質膜22の面方向の導電性 を確保することができる。



【請求項1】 固体高分子型の燃料電池に用いられる電 解管膜と数様との接合体であって、

前記電解質膜に少なくとも一方の面に複数の導電性繊維 を所定の角度をもって固着させてなる電解質膜と電極と の接合体。

【請求項2】 前記導電性繊維は、炭素繊維である請求項1記載の電解質膜と電極との接合体。

【請求項3】 前記簿電性繊維は、少なくとも前記電解 質膜と接触する部位近傍に触媒を担持してなる請求項1 10 または2記載の電解質膜と電極との接合体。

【請求項4】 前記所定の角度は路90度である請求項1ないし3いずれか記載の電解質膜と電極との接合体。

【請求項5】 前記電解質膜の前記複数の導電性機維が 固着された面の表面に複数の導電性粒子を備える請求項 1ないし4いずれか記載の電解質膜と電極との接合体。

【請求項6】 固体高分子型の燃料電池に用いられる電 解質膜と電極との接合体の製造方法であって、

前記電解質膜を帯電させると共に該電解質膜とは異なる 極性に複数の連貫性路線を帯電させる帯電工程と、

前配帯電させた電解質膜と鉄電解質膜とは異なる極性に 帯電させた複数の導電性繊維との電界の作用により鉄電 解質膜の少なくとも一方の面に該複数の導電性繊維を所 定の角度をもって植毛する電界植毛工程とを備える電解 質膜と電極との接合体の製造方法。

【請求項7】 固体高分子型の燃料電池に用いられる電 解質膜と電極との接合体の製造方法であって、

複数の導電性繊維を帯電させる帯電工程と、

前記電解質膜の一方の面に前記複数の導電性繊維とは異なる極性の帯電した帯電体を配置する帯電体配置工程と、

前記帯電させた複数の導電性繊維を前記帯電体を配置した電解質膜の他方の面から近づけて、該複数の導電性繊維と該帯電体との電界の作用により該電解質膜の他方の面に該複数の導電性繊維を所定の角度をもって植毛する電界植毛工程とを備える電解質膜と電極との接合体の製造方法。

【請求項8】 前記帯電工程に先立って行なわれる工程であって、前記複数の導電性繊維に触媒を担待させる触 媒担待工程を備える請求項6または7記載の電解質膜と 40 電極との接合体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用の電解 質膜と電極との接合体およびその製造方法に関し、詳し くは、固体高分子型の燃料電池に用いられる電解質膜と 電極との接合体およびその製造方法に関する。

[0002]

【従来の技術】従来、この種の燃料電池用の電解質膜と 繊維は、少なくとも前記電解質膜と接触する部 電極との接合体としては、根水処理したガス透過性のカ 50 触媒を担持してなるものとすることもできる。

ーポンペーパーの表面に触媒を担持した炭素繊維を塗布し、炭素繊維が塗布された面が電解質膜と接するようカーポンペーパーと電解質膜とを接合してなるものが迷索されている(例えば、特開平10-223233号公報など)。この電解質膜と電極との接合体によれば、この接合体を用いて燃料電池を構成したときに、電解質膜の接合面に炭素繊維を備えることにより、これを備えないものに比して電池の性能が向上するとされている。【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、この電解質膜と電極との接合体では、炭素繊維が電解質膜に対してランダムに配置されるために、電極反応により生じる生成水の排水性や燃料としてのガスの透過性が低い部分が生じるという問題があった。炭素繊維が電解質膜に対して一様に配置されていれば、部分的に排水性やガス透過性が低下する問題は回避することができるが、炭素繊維をカーボンペーパーに強布するだけでは炭素繊維を電解質膜に対して一様に配置することはできない。また、炭素繊維を電解質膜に一様に配置しても、どの様に一様に配置するかによって排水性やガスが透過性が変化するから、その一様な配置も問題となる。

【0004】本発明の燃料電池用の電解質膜と電極との接合体は、排水性やガス透過性をよくすることを目的の一つとする。また、本発明の燃料電池用の電解質膜と電極との接合体は、排水性やガス透過性に加えて導電性をもよくすることを目的の一つとする。本発明の燃料電池用の電解質膜と電極との接合体の製造方法は、排水性やガス透過性のよい接合体の製造方法を提供することを目的とする。

# [0005]

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】本 発明の燃料電池用の電解質膜と電極との接合体およびそ の製造方法は、上述の目的の少なくとも一部を達成する ために以下の手段を採った。

【0006】本発明の第1の燃料電池用の電解質膜と電 極との接合体は、固体高分子型の燃料電池に用いられる 電解質膜と電極との接合体であって、前記電解質膜に少 なくとも一方の面に複数の導電性機様を所定の角度をも って固着させてなることを要旨とする。

【0007】この本発明の燃料電池用の電解質膜と電接 との接合体では、複数の導電性機維が所定の角度をもっ て電解質膜に固着されることにより、電極反応により生 じる生成水の排水性を向上させると共に燃料としてのガ スの透過性をも向上させることができる。

【0008】こうした本発明の燃料電池用の電解質膜と 管極との接合体において、前記導電性繊維は、炭素繊維 であるものとすることもできる。また、本発明の燃料電 池用の電解質膜と電極との接合体において、前記導電性 繊維は、少なくとも前記電解質膜と接触する部位近傍に 触媒を担持してなるものとすることもできる。

2

【0009】さらに、本発明の燃料電池用の電解質膜と 電極との接合体において、前記所定の角度は略90度で あるものとすることもできる。こうすれば、排水性とガ ス透過性を更に向上させることができる。

【0010】あるいは、本発明の燃料電池用の電解質膜 と鼠極との接合体において、前記電解質膜の前記複数の 導電性繊維が固着された面の表面に複数の導電性粒子を 備えるものとすることもできる。 こうすれば、導電性微 維関や導電性粒子間および導電性繊維と導電性粒子間の 接触が多くなるから、電解質膜表面における面方向の導 10 電性を高くすることができ、接合体の抵抗を小さくする ことができる。

【0011】本発明の第1の燃料電池用の電解質膜と電 極との接合体の製造方法は、固体高分子型の燃料電池に 用いられる電解質膜と電極との接合体の製造方法であっ て、前記電解電膜を搭載させると共に該電解電膜とは異 なる極性に複数の導電性繊維を帯電させる帯電工程と、 前記搭載させた電解質膜と該電解質膜とは異なる極性に 帯電させた複数の導電性繊維との電界の作用により該電 解質膜の少なくとも一方の面に該複数の導電性繊維を所 20 定の角度をもって植毛する電界植毛工程とを備えること を要旨とする。

【0012】この本発明の第1の燃料電池用の電解質膜 と電極との接合体の製造方法では、電界植毛の技術によ り複数の導電性繊維を電解質膜に固着するから、複数の 導電性機能を一様に電解質膜に配置した状態で固着させ ることができる。この結果、排水性やガス透過性の高い 電解質膜と電極との接合体を製造することができる。特 に、所定の角度を略90度とすれば、排水性とガス透過 性が更に高い電解質膜と電極との接合体を製造すること 30 ができる。

【0013】本発明の第2の燃料電池用の電解質膜と電 極との接合体の製造方法は、固体高分子型の燃料電池に 用いられる電解質膜と電極との接合体の製造方法であっ て、複数の導電性繊維を帯電させる帯電工程と、前記電 経管膜の一方の面に前記複数の導館性繊維とは異なる極 性の帯電した帯電体を配置する帯電体配置工程と、前記 帯電させた複数の導電性繊維を前記帯電体を配置した電 解質膜の他方の面から近づけて、該複数の導電性繊維と **該供貸体との世界の作用により該電解管膜の他方の面に 40** 該複数の導電性繊維を所定の角度をもって植毛する電界 植毛工程とを備えることを要旨とする。

【0014】この本発明の第2の燃料電池用の電解質膜 と電極との接合体の製造方法では、電界植毛の技術によ り複数の導電性繊維を電解電膜に固着するから、複数の 導電性繊維を一様に電解質膜に配置した状態で固着させ ることができる。この結果、排水性やガス透過性の高い 電解質膜と電極との接合体を製造することができる。し かも、電解質膜を帯電させる必要がない。また、所定の い電解質膜と電極との接合体を製造することができる。 【0015】こうした本発明の第1または第2の燃料電 池用の電解質膜と電極との接合体の製造方法において、 前配帯電工程に先立って行なわれる工程であって、前記 複数の導電性繊維に触媒を担持させる触媒担持工程を備 えるものとすることもできる。

#### [0016]

【発明の実施の形態】次に、本発明の実施の形態を実施 例を用いて説明する。図1は、本発明の一実施例である 燃料電池用の電解質膜と電極との接合体20の構成の概 略を示す構成図である。図示するように、接合体20 は、意解質膜22と、この電解質膜22の両面に植毛さ れた複数の炭素繊維24と、電解質膜22の表面に塗布 された複数のカーポン粒子26とを備える。

【0017】電解質膜22は、高分子材料、例えばフッ 素系樹脂により形成されたイオン交換膜であり、湿潤状 想で良好なプロトン導電性を示す。実施例では、電解質 膜22としてDuPont社製のNafion 122 を用いた。

【0018】炭素繊維24は、その表面に白金または白 金と他の金属との合金を触媒として担持しており、電解 質膜22に対して一様に略90度の角度をもって植毛さ れている。したがって、電解質膜22からの排水性や電 解質膜22へのガス透過性を向上させることができる。 なお、実施例では、直径が約0. 1μmで長さが約1μ mの炭素短機維に白金を50%wt担持させたものを炭 奏銭繰り4として用いた。

【0019】カーボン粒子26は、電解質膜22の表面 における面方向の導電性を向上させるために電解質膜2 2に塗布されるものである。したがって、カーボン粒子 26の電解質膜22への塗布量は、炭素繊維24の電解 質膜22への自付量によって増減する。即ち、カーポン 粒子26の電解質膜22への塗布量は、炭素繊維24の 電解質膜22への目付量が多ければ少なく、逆に炭素織 **維24の電解管膜22への目付量が少なければ多くな** る。特に炭素繊維24の電解質膜22への目付量が十分 に多く、隣接する炭素繊維24が十分に接触して電解質 膜22の面方向の導電性が十分に確保できる場合には、 カーポン粒子26の電解質膜22への愛布は行なわなく てもよい。なお、カーボン粒子26は、炭素繊維24の 直径と同程度かそれより若干大きな直径とするのが好ま

【0020】次に、こうして構成された実施例の燃料電 池用の電解質謨と電極との接合体20の製造方法につい て説明する。図2は、実施例の接合体20の製造の様子 を例示する製造工程図である。接合体20の製造は、ま ず、準備した炭素繊維に触媒としての白金を担持させる 工程と電解質膜22にカーボン粒子26を盤布する工程 とから始まる(工程S10, S12)。この二つの工程 角度を略90度とすれば、排水性とガス透過性が更に高 so は、いずれを先に行なってもよく、また同時に並行して 行なってもよい。実施例では、電解質度22へのカーボン粒子26の塗布は、その厚みが数μm以下となるようにした。前述したように、カーボン粒子26の塗布量は、炭素繊維24の電解質度22への目付量によって定まるものである。なお、カーボン粒子26の電解質膜22への塗布は、例えばスクリーン印刷などにより行なうことができる。

【0021】次に、電解質膜22を陽極に帯電させると 共に触媒を担持させた複数の炭素繊維24を陰極に帯電 させて(工程S14)、電界植毛の技術を用いて複数の 10 炭素繊維24を電解質膜22に植毛する(工程S1 6)。実施例では、メサック社製の電界流動粉体強装機 により電解質膜22に複数の炭素繊維24を植毛した。 そして、複数の炭素繊維24が植毛された電解質膜22 に熱を加えて複数の炭素繊維24を電解質膜22に固着 させて(工程S18)、接合体20を完成する。

【0022】こうして製造された実施例の燃料電池用の 電解質膜と電極との接合体20を用いて構成した燃料電 池の性能を図3に例示する。図中曲線Aは実施例の接合 体20を用いて構成した燃料電池の性能を示し、曲線B は比較例として炭素繊維24に代えて触媒を担持するカーボン粒子を電解質膜に接合して構成された接合体を用いて構成した燃料電池の性能を示す。なお、比較例は、アルコールを溶媒として拉径が約0.1 μ m のカーボン 粒子を分散させて関整したインクをドクターブレードにより電解質膜に印刷し、その後、熱を加えてカーボン粒子を飼解質膜に印刷し、その後、熱を加えてカーボン粒子と電解質膜を全一体化した。図示するように、実施例の接合体20を用いた燃料電池は、比較例に比して良好な性能を示す。特に電流密度が高い領域では、性能の向上が著しい。

【0023】以上説明した実施例の燃料電池用の電解質膜と電極との接合体20によれば、電解質膜22に対して一様に略90度の角度となるよう植毛された複数の炭素繊維24を備えることにより、電解質膜22からの排水性や電解質膜22へのガス透過性を向上させることができる。この結果、実施例の接合体20を用いて燃料電池を構成すれば、燃料電池の性能を向上されば、カーボン粒子26を備えることにより、電解質膜22の表面における面方向の導電性を向上させることができる。

【0024】実施例の接合体20の製造方法によれば、電界植毛の技術を用いることにより、電解質膜22に対して一様に略90度の角度となるよう複数の炭素繊維24を植毛することができ、電解質膜22からの排水性や電解質膜22へのガス透過性が高い電解質膜と電極の接合体を製造することができる。

【0025】実施例の接合体20では、複数の炭素繊維 24は略90度の角度をもって電解質膜22に因着され ているが、排水性やガス透過性の観点から90度でなく てもかまわず、一様な方向に所定の角度をもって固着さ れていてもよい。また、一様である必要はなく、所定の 角度をもっていればランダムな方向を向いていても差し 支えない。

【0026】実施例の接合体20では、電解資膜22に 炭素繊維24を植毛したが、導電性の繊維であれば、炭 素繊維以外のものを植毛するものとしてもよい。

【0027】実施例の接合体20の製造方法では、電解 質膜22と複数の炭素繊維24とを帯電させたが、複数 の炭素繊維24のみを帯電させて電解質膜22を帯電さ せず、電解質膜22の複数の炭素繊維24を植毛する面 の裏面に炭素繊維24とは異なる極性の帯電体を配置し て電界植毛技術により電解質膜22に複数の炭素繊維2 4を植毛するものとしてもよい。この場合の接合体の製 造工程を図4に示す。図示するように、この接合体は、 まず、炭素繊維24へ触媒を担持させ、電解質膜22に カーポン粒子26を篦布すると共に、触媒を担持した炭 素繊維24を陰極に帯電させる(工程S20~S2 4)。続いて、帯電させていない電解質膜22の炭素機 **維24を植毛させない面に陽極に帯電させた帯電体を配** 置し(工程S26)、電界植毛の技術を用いて複数の炭 素繊維24を電解質膜22に植毛し(工程S28)、電 解質膜22に熱を加えて複数の炭素繊維24を電解質膜 22に固着させて(工程S30)、接合体20を完成す る。この変形例の製造方法によれば、電解質膜22を帯 **聞させなくても複数の炭素繊維24を植毛することがで** きる.

【0028】以上、本発明の実施の形態について実施例を用いて説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において、種々なる形態で実施し得ることは勿論である。

### 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施例である燃料電池用の電解質 膜と電極との接合体20の構成の機略を示す構成図であ ス

【図2】 実施例の接合体20の製造の様子を例示する 製造工稿図である。

40 [図3] 実施例の燃料電池用の電解質膜と電極との接合体20を用いて構成した燃料電池の性能を例示するグラフである。

【図4】 変形例の電解質膜と電極の接合体の製造の様子を例示する製造工程図である。

# 【符号の説明】

20 接合体、22 電解質膜、24 炭素繊維、26 カーポン粒子。

